

**This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

**Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.**

**Defects in the images may include (but are not limited to):**

- **BLACK BORDERS**
- **TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- **FADED TEXT**
- **ILLEGIBLE TEXT**
- **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- **COLORED PHOTOS**
- **BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS**
- **GRAY SCALE DOCUMENTS**

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

## ⑫ 公開特許公報(A)

昭63-248442

⑪ Int. Cl.

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 昭和63年(1988)10月14日

B 01 J 23/26

B 01 D 53/36

B 01 J 23/28

1 0 2

Z-7918-4G

C-8516-4D

Z-7918-4G ※審査請求 未請求 発明の数 2 (全9頁)

⑭ 発明の名称 担体付き触媒及びその製造方法

⑮ 特 願 昭62-321155

⑯ 出 願 昭62(1987)12月18日

優先権主張 ⑰ 1986年12月19日 ⑱ 西ドイツ(DE) ⑲ P 36 43 605.4

⑳ 発 明 者 ハンス・ヨアヒム・コ シュリツヒ ドイツ連邦共和国 ボクム・ダールハウゼン、アム・シヤンベルゲ 10 ベー

㉑ 出 願 人 ドクトル・ツエー・オットー・フオイエルフ エスト・ゲゼルシャフト・ミット・ベシユレンクテル・ハフツング ドイツ連邦共和国 ボクム・ダールハウゼン、ツエー・オットー・シユトラッセ 222

㉒ 代 理 人 弁理士 佐々木 清隆 外3名  
最終頁に続く

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

担体付き触媒及びその製造方法

## 2. 特許請求の範囲

(1) 金属酸化物を含む活性触媒被膜が沈着した固体多孔質担体を含む酸化窒素還元用担体付き触媒であって、活性触媒被膜が次の工程:

(a) (A) Al、SiおよびTiから成る群から選択した少なくとも1種類の元素;

(B) V、Mn、Fe、CoおよびNiから成る群から選択した少なくとも1種類の元素;

(C) Cr、Mo、WおよびSmから成る群から選択した少なくとも1種類の元素;および

(D) Mg、Cu、Zn、La、CeおよびCdから成る群から選択した任意の少なくとも1種類の元素

の溶解性かつ加水分解可能な化合物成分から、前記成分の割合が元素の原子%として表現して(A)

50~98%、(B) 1~50%、(C) 0.5~20%、(D) 0~5%および原子%の合計が

100%であるように形成した溶液を、任意に酸性触媒または塩基性触媒の存在下の有機溶媒中で、化合物の完全な加水分解に要する化学量論量よりも少ない量の水と反応させる;(b) 生成した予備縮合物を任意に酸性触媒または塩基性触媒の存在下において、残りの加水分解可能な成分の加水分解に要する水の量と任意にさらに縮合させる;

(c) 固体の多孔質触媒担体を工程(a)からの予備縮合物の溶液または工程(b)からのさらに縮合した生成物の溶液で被覆し、最初に挙げた場合の予備縮合物は被覆担体上でさらに縮合させる;および(d) 被覆担体を乾燥させ、熱処理するから成るゾルゲールプロセスによって得られたものである担体付き触媒。

(2) 活性触媒被膜がTi、VおよびWの酸化物を含む特許請求の範囲第1項記載の担体付き触媒。

(3) 多孔質担体が少なくとも80%の自由断面積を有するハネカム構造の焼成セラミック体であ

る特許請求の範囲第1項または第2項記載の担体付き触媒。

(4) セラミック体がコーゼライトおよび／またはムライトおよび／または石器および／または酸化アルミニウムから成る特許請求の範囲第3項記載の担体付き触媒。

(5) 活性触媒被膜による担体の負荷量が被覆しない担体を基準にして0.1～30重量%である特許請求の範囲第1項～第4項のいずれか1項に記載の担体付き触媒。

(6) 活性触媒被膜が本質的に非品質である特許請求の範囲第1項～第5項のいずれか1項に記載の担体付き触媒。

(7) 活性触媒被膜が50～500 ml/gの比表面積を有する特許請求の範囲第1項～第6項のいずれか1項に記載の担体付き触媒。

(8) 次の工程：

- (a) (A) Al、SiおよびTiから成る群から選択した少なくとも1種類の元素；  
(B) V、Mn、Fe、CoおよびNiか

ら成る群から選択した少なくとも1種類の元素；

(C) Cr、Mo、WおよびSmから成る群から選択した少なくとも1種類の元素；および

(D) Mg、Cu、Zn、La、CeおよびGdから成る群から選択した任意の少なくとも1種類の元素

の溶解性かつ加水分解可能な化合物成分から、前記成分の割合が元素の原子%として表現して、

(A) 50～98%、(B) 1～50%、(C) 0.5～20%、(D) 0～5%および原子%の合計が100%であるように形成した溶液を任意に

酸性触媒または塩基性触媒の存在下の有機溶媒中で、化合物の完全な加水分解に要する化学量論量より少ない量の水と反応させる；(b) 生成した予備縮合物を任意に酸性触媒または塩基性触媒の存在下において、残りの加水分解可能な成分の加水分解に要する水の量と任意にさらに縮合させる；(c) 固体の多孔質触媒担体を工程(a)から予

備縮合物の溶液または工程(b)からのさらに縮合した生成物の溶液で被覆し、最初に挙げた場合の予備縮合物は被覆担体上でさらに縮合させる；および(d) 被覆担体を乾燥させ、熱処理するから成る特許請求の範囲第1項記載の担体付き触媒の製造方法。

(9) 被覆担体の熱処理を200～500℃において実施する特許請求の範囲第8項記載の方法。

(10) 酸化窒素の還元、特に燃焼排気ガスの脱窒への特許請求の範囲第1項～第7項のいずれか1項に記載の担体付き触媒の使用。

### 3. 発明の詳細な説明

本発明は酸化窒素還元用の担体付き触媒、その製造方法および燃焼排気ガス中の酸化窒素の還元へのその使用に関する。

取壊への警戒が強化された結果として、あらゆる種類の排気ガスの脱窒用触媒がますます重要視されている。現在、例えば発電所のような大きな燃焼プラントの排気ガスからの酸化窒素除去の化学工学的解決法に関して研究がなされている。

現在、最も開発されている方法はいわゆるSCR(選択的接触還元)方法であり、この方法では酸化窒素を含む排気ガス流に測定した量のアンモニアを加し、適当な触媒の存在下で酸化窒素と反応させて、窒素と水とを形成する。これに関連して、大規模の利用可能な方法は例えば酸化チタンまたは酸化バナジウムのような重金属の酸化物と混合した二酸化チタンから成る触媒を用いる：例えば、西ドイツ公報第2,458,888\*公報参照。

これらの触媒の欠点は、セラミック塩基性物質の強制的腐食性がかなり不十分であること(耐用寿命1～3年間)、高価な触媒活性物質をかなり多重に消費することおよび重金属重量が高いために、対応して廃棄物処理問題が生ずることである。

前記欠点を有さない、または軽度にする改良脱窒触媒の開発に関する広範囲な研究の範囲内で、発明者は担体付き触媒の全体積の一部をなす触媒活性被膜で被覆した、低コストの多孔質セラミック担体材料の使用を考えている。これに関連して、

担体材料が充分な多孔度と、これに対応して、充分な反応率を保證するために用いられる大きな比面積を有することが、1つの必要条件である。次に、触媒活性成分の塩溶液をセラミック担体材料に単純に含浸させると、乾燥過程中に発生する水分によって活性成分が担体付き触媒の表面に移動するので、非常に緩和な結果を生ずるにすぎないことが明らかになった。この方法では、充分に大きい活性表面を得ることができない。

今回、いわゆるゾルーゲル方法を用いると、それ自体がある一定の多孔度を有し、触媒反応に利用できる表面の拡大に寄与する活性触媒被膜を固体多孔質担体材料の孔の中に形成できることが意外にも判明した。ゾルーゲル法によって多孔質担体中に形成された活性被膜が本質的に非晶質であるが例外的に大きい触媒活性を有することは、全く意外であった。今まで、例えば西ドイツ公第2,458,888号公報に述べられているような、金属酸化物触媒の触媒活性は触媒組成物中のある一定の結晶相(アナタース型 $TiO_2$ 、結晶

質 $WO_3$ 等)の存在に関係づけられていた。

それ故、本発明の対象は固体多孔質担体の上部と内部に、ゾルーゲル法によって形成される、金属酸化物含有活性触媒被膜を有する酸化窒素還元担体付き触媒である。

本発明の対象は更に、次の工程：

- (a) (A) Al、SiおよびTiから成る群から選択した少なくとも1種類の元素；
- (B) V、Mn、Fe、CoおよびNiから成る群から選択した少なくとも1種類の元素；
- (C) Cr、Mo、WおよびSmから成る群から選択した少なくとも1種類の元素；
- (D) Mg、Cu、Zn、La、CeおよびCdから成る群から選択した任意の少なくとも1種類の元素

の溶解性かつ加水分解可能な化合物成分から、前記成分の割合が、元素の原子%として表現して、

(A) 50~98%、(B) 1~50%、(C)

0.5~20%、(D) 0~5%および原子%の合計が100%であるように形成した溶液を、任意に酸性触媒または塩基性触媒の存在下の有機溶媒中で、化合物の完全な加水分解に要する化学量論量より少ない量の水と反応させる；(b) 生成した予備縮合物を任意に酸性触媒または塩基性触媒の存在下で、残りの加水分解可能な成分の加水分解に要する水の量と任意にさらに縮合させる；

(c) 固体の多孔質触媒担体を工程(a)からの予備縮合物の溶液または工程(b)からのさらに縮合した生成物の溶液で被覆し、最初に挙げた場合の予備縮合物は被覆担体上でさらに縮合する；および(d) 被覆担体を乾燥させ、熱処理するから成る前記担体付き触媒の製造方法である。

最後に、本発明の対象は酸化窒素の還元、特に燃焼排気ガスの脱窒への前記担体付き触媒の利用である。

本発明による担体付き触媒のための適当な担体は特に、例えばコーゼライト、ムライト、石器、酸化アルミニウムおよび/またはチタン酸アルミ

ニウムから成る多孔質セラミック担体材料である。西ドイツ公開第3,632,321,7号明細書と公開第3,632,322,5号明細書に述べられている；少なくとも80%の自由(開放)断面積を有するハニカム構造の焼成セラミック体から成る担体が特に好ましい。セラミック体は最大限に低い自然の多孔度を有するが、1種類以上のいわゆる開放性物質によって形成された二次孔を含む。二次孔の目的は表面積を高め、縦チャンネルから貫流によって直接接近するができ、触媒活性被膜が沈着することのできる容積を形成することである。自然の多孔度による孔は通常10~3000nm直径を有するが、二次孔の孔径は4000~6000nmの範囲内である。セル壁の1次孔と2次孔による強間隙率は30~70%であることが好ましい。成形後の押出成形担体の剛性を強化するために、担体のセラミック混合物原料に任意に鉱物繊維を加えることができる。このためには、例えばガラス繊維、ロックウール繊維、ムライト繊維または酸化アルミニウム繊維が適し

ている。

活性触媒被膜を形成するためには、出発成分(A)、(B)、(C)および任意に(D)を有機溶媒に可溶な加水分解可能な(すなわち、水によって分解して酸化物または水酸化物になる)化合物の形で用いる。このために通した化合物は、例えばハロゲン化物(例えば、塩素化物)、硝酸塩、硫酸塩、カルボン酸塩(例えば、酢酸塩)、アセチルアセトネートおよびアルコラート(例えば、メチラート、エチラート、イソプロピラートおよびn-ブチラート)である。

適当な溶媒は非水有機溶媒であり、例えばメタノール、エタノール、n-プロパノール、イソプロパノールまたはn-ブタノールのようなアルコール、ジメトキシエタンのようなエーテル、ジメチルグリコールアセテートのようなエステル、アセトンまたはチメルエチルケトンのようなチトンである。

予備縮合物を製造するには、出発成分を化合物の完全な加水分解に要する化学量論量よりも少な

る。

得られた予備縮合物溶液は触媒担体にそのものとして塗布することができ、その後、例えば水蒸気を含む雰囲気中で加水分解と縮合プロセスを完成させる。

この代りに、少なくとも残りの加水分解可能な成分の加水分解に要する量の水、一般には化学量論量の水を加えることによって、加水分解と縮合が予備縮合物溶液中で直ちに継続する。

上記触媒の1種類の存在下で縮合が任意にさらに実施される。全触媒濃度は例えば5 mol/lまでである。

室温から使用溶媒の沸点までの温度において、特に触媒担体への塗布をまだ可能にするような溶液の粘度が得られるまでに、さらに縮合を行わせる。

予備縮合物溶液またはさらに縮合した生成物の溶液による担体の被膜は、例えば浸せき、含浸または吹付けのような、慣習的な方法によって実施することができる。被覆は空气中または不活性ガ

い量の水と、好ましい混合比で反応させる。

予備縮合は触媒の存在下で実施するのが好ましい。適当な触媒はプロトンまたはヒドロキシリオンを分型する化合物およびアミンである。使用可能な触媒の特定の例は、塩酸、硫酸、リン酸、ギ酸または酢酸のような、有機酸および無機酸、ならびにアンモニア、例えばナトリウム、カリウムもしくはカルシウムの水酸化物のような、アルカリ金属もしくはアルカリ土金属の水酸化物および例えば低級アルキルアミンもしくはアルカノールアミンのような反応媒質に可溶なアミンのような有機塩基または無機塩基である。これに関連して、揮発性酸および塩基、特に塩酸、アンモニアおよびトリエチルアミンが特に好ましい。全触媒濃度は例えば3 mol/lまでである。

予備縮合は室温から使用有機溶媒の沸点までの温度において、通常のように実施されるが、室温において実施するのが好ましい。

予備縮合は生成した予備縮合物の溶液がまだ薄いコンシステンシーを有する程度にまで進行させ

ス下で大気圧、減圧または過圧において実施することができる。

次に溶媒を蒸発させるために、被覆担体を好ましくは50~200℃において1~24時間乾燥させる。次に被覆した担体付き触媒を好ましくは200~500℃の温度において、特に300℃において1~24時間熱処理する。

このようにして得られた担体付き触媒では、活性触媒被膜による担体の負荷量は被覆しない担体を基準として好ましくは0.1~30重量%、特に10~20重量%である。活性被膜はX-非晶質であり、通常50~500 ml/g、好ましくは150~350 ml/gの比表面積を有する。

本発明による担体付き触媒は酸化窒素の接触還元、特に燃焼排気ガスの脱窒に用いることができる。この触媒によって処理したガス混合物は一般に、窒素、酸素、一酸化炭素、二酸化炭素、酸化窒素およびおそらく一酸化硫黄をも含有する。

例えば窒素のような無害なガスに転化すべき酸化窒素は例えばNO、N<sub>2</sub>O<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>O、お

よび $\text{N}_2\text{O}$ を含む。

酸化窒素の還元は好ましくはアンモニアの存在下で実施するのが好ましく、アンモニアの量は被処理ガス混合物中の酸化窒素の含量に依存する。通常、酸化窒素1モルにつきアンモニア0.5～5モルが用いられる。

酸素の存在はアンモニア存在下での一酸化窒素( $\text{NO}$ )の還元を容易にする。 $\text{NO}$ より高い酸化窒素の場合には、酸素の存在が必ずしも必要ではない。

酸化窒素還元は過剰圧力の大気圧下で、例えば $100\sim450^\circ\text{C}$ の温度において実施することができる。

本発明による担体付き触媒は慣習的な固体触媒と担体付き触媒を凌駕する次の利点を特に有する：

1. 担体は高度に多孔質、耐摩耗性のセラミックであり、比重が低く(焼く $400\text{ kg/ml}$ )、自由断面積が大きい(少なくとも $80\%$ )、その結果として流れ抵抗が低く、これに伴ってガス輸送時のエネルギーが節約される；

生するにすぎない。

次の実施例によって、本発明をさらに説明する。

#### 実施例1

##### 担体付き触媒の製造

$\text{Ti}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$  ( $\text{Ti}$  60原子%) 42.6 g、 $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$  ( $\text{V}$  31.6重量%) 28.4 gおよび $\text{WCl}_6$  ( $\text{W}$  8.4原子%) 10.4 gをメクノール250 ml中に溶解し、その後0.01 M塩酸水溶液1.35 mlを加え、溶液を室温において2時間攪拌する。水の添加は成分の完全な加水分解に化学量論的に必要な水量の1/16に等しい。

予めメクノールで湿らせたコーゼライトのハニカム体(約35 cd)を生成した上記の溶液中に1時間浸せきしてから取り出し、相対湿度30～50%の雰囲気中に室温において貯蔵した。得られた担体付き触媒を $120^\circ\text{C}$ において1時間乾燥させ、次に $300^\circ\text{C}$ において5時間熱処理した。

##### 燃焼排気ガスの脱窒

被覆ハニカム体を電気加熱可能なフローリアク

2. 触媒活性物質は溶解状態の状態で塗布されるので、この大部分の量は担体の孔の中に埋込まれるが、公知の酸化金属担体の場合には、金属酸化物分散系による表面的な波打のみが行われるにすぎない。
3. 単なる表面被覆とは対照的に、担体中に沈着した触媒活性物質は機械的摩耗を阻止する；
4. 少量の触媒物質によって、高い触媒作用が生ずる；
5. ごく少ない絶対量の触媒活性物質が担体上部および内部に導入されるにすぎないので、金属消費量もごく少量である；
6. 担体中の重金属含量が低いので、全触媒体をリサイクルして、新しい担体の製造に用いることができる；
7. セラミック担体が安定である結果として、摩耗されない触媒体を洗浄して、再被覆することができる；
8. 担体付き触媒の耐摩耗性が高い結果として、環境を汚染する汚染物質ダストをごく少量発

ターに表入し、このリアクターに次の純粋なガス：窒素、酸素、一酸化窒素、アンモニア、二酸化硫黄から成るガス混合物を供給する。これを行うために、純粋なガスを鋼製圧力シリンダーから得、測定量を混合セクションに導入し、上流予熱器を通して触媒に供給した。

触媒量に対するガス流量(室間速度)比は $1500\text{ s}^{-1}$ である。測定は酸素の測定量を加えてまたは加えないで、 $200\sim360^\circ\text{C}$ の温度において実施する。

$\text{NO}$ 還元率(%)は分析計(例えば化学発光、化学的センサー)を用いて、または温式化学的手段を用いて、リアクターのガス供給量またはガス放出量を基準にして算出する。結果は下記の第1表に示す：

第1表

触媒温度 ( $^\circ\text{C}$ )	$\text{NO}$ 投入量 (ppm)	$\text{O}_2$ 含量 (%)	$\text{NH}_3:\text{NO}$	$\text{NO}$ 還元率 (%)
240	1000	—	0.65	38
240	—	—	1	52.6

280	—	0.65	51.5
280	—	1	71
320	—	0.65	48.1
320	—	1	77.4
360	—	0.65	51.8
360	—	1	75.2

240	1000	3.1	0.65	53.7
240		3.1	1	81.6
280		3.2	0.65	52
280		3.2	1	89.5
320		2.9	0.65	49
320		3	1	87.7
360		3.1	0.65	52.3
360		3.1	1	80

中間乾燥後に浸せき過程を任意に数回くり返す(秤量によってチェックする)。温度条件は実施例1の条件に相当する。

触媒活性の測定は実施例1の条件下で実施する。第Ⅱ表に示したデータは実施例2の触媒組成物8.9重量%で被覆した担体に関して得られたものである。

第Ⅱ表

触媒温度 (℃)	NO投入量 (ppm)	O <sub>2</sub> 含量 (%)	NH <sub>3</sub> :NO	NO還元率 (%)
160	1000	3		33.6
200				49.1
240				65.6
280				86.8
320				91.5
320			0.96	92.5
360			0.66	91.5
400				96.2

第Ⅲ表に示した測定データは、実施例3からの

実施例2~4

Ti、WおよびVの酸化物から成る触媒活性成分の組成

実施例	組成(原子%)			使用出発化合物			
	Ti	W	V	Ti(OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>4</sub> (g)	WCℓ <sub>2</sub> (g)	VO(OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>3</sub> (g)	0.01MHCℓ (mℓ)
2	72	8.4	19.6	51.1	10.4	17.6	22.6
3	76	20	4.0	54.0	24.3	3.6	24.9
4	80	8.4	8.6	58.9	10.4	7.7	23.3

Ti(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub>、VO(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>3</sub>およびWCℓ<sub>2</sub>をメタノール250mℓ中に溶解する。0.01MHCℓの記載量の1/16を加え、室温において二時間攪拌した。水添加量は出発化合物の完全な加水分解に化学量論的に必要な水量の1/16に等しい。

コージュライトヘニカム体を被覆するには、HCℓの残量を被覆溶液に加え、その後混合物をメタノール750mℓで希釈し、30分間攪拌する。得られた溶液を担体の浸せき被覆に用いる。湿った雰囲気中での室温における中間貯蔵は省略することができる。担体に触媒を十分に負荷させるために、120℃における短時間(2時間)の

触媒組成物7.3重量%によって被覆した担体に関して測定したものである。

第Ⅲ表

触媒温度 (℃)	NO投入量 (ppm)	O <sub>2</sub> 含量 (%)	NH <sub>3</sub> :NO	NO還元率 (%)
160	600	0	0.66	32.5
180				44.7
240				56.1
280				68.4
320				75.4
360				78.9
400				78.9
450				82.5

第Ⅳ表に示した測定データは実施例4からの触媒組成物14.4重量%によって被覆した担体に関して測定したものである。

第IV表

触媒温度 (℃)	NO投入量 (ppm)	O <sub>2</sub> 含量 (%)	NH <sub>3</sub> :NO	NO還元率 (%)
120	980	3	0.89	26.5
180				58.2
260				85.4
320	950		0.92	90.0
320			1.01	92.6
320	980		0.98	92.9
320	990		0.97	93.9
360				94.2
400				94.2

この担体付き触媒によって、工業的パイロット試験を実施した：

触媒量：11.4ℓ

空間速度：3000時<sup>-1</sup>

800ppmのNOを投入して、天然ガス燃焼

触媒温度：330℃

酸素含量：6.2容量%

する。この場合には、第5表に述べた測定データを測定する。

第V表

触媒温度 (℃)	NO投入量 (ppm)	O <sub>2</sub> 含量 (%)	NH <sub>3</sub> :NO	NO還元率 (%)
160	1000	0	0.66	5.2
200				17.7
240				28.1
320				58.3
360				68.2
400				82.3

#### 実施例6

Ti、MoおよびVの酸化物から成る触媒活性成分の組成物

Ti83:Mo8.4:V8.6(原子%)の組成を有する触媒成分による担体付き触媒の製造。

Ti(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub>(Ti83原子%)189gとVO(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>3</sub>(V8.6原子%)24.4gとを混合し、氷浴中で冷却する。MoCl<sub>3</sub>

NH<sub>3</sub>/NO比=1

#### 実施例5

Ti、CrおよびVの酸化物から成る触媒活性成分の組成物

Ti83:Cr8.4:V8.6(原子%)の組成を有する触媒成分による担体付き触媒の製造。

Ti(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub>(Ti83原子%)200gとVO(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>3</sub>(V8.6原子%)24.6gとを混合する。この混合物にCrCl<sub>3</sub>(Cr8.4原子%)13gを加えて、2時間還流沸とうさせて、CrCl<sub>3</sub>を全て溶解させる。メタノール1000mlを加える。生成した褐色溶液を被覆溶液として用いる。コーゼライトハニカム体の被覆を実施例1で述べた方法によって実施する：20℃、相対湿度65%において2時間中間処理；120℃において30分間中間乾燥を行い、被覆プロセスは5回くり返す。次に400℃において5時間焼もどした後に、担体上に沈着した触媒物質量は14.5重量%である。

触媒活性の測定は実施例1におけるように実施

(Mo8.4原子%)22.9gを混合物に溶解し、混合物をメタノール1000mlで希釈する。水3.7mlを加えた後に、攪拌を80分間行い、次にさらに水56.3mlを攪拌しながら加える。褐色の粘質な溶液が得られ、これを被覆溶液として用いる。

コーゼライトハニカム体の被覆を実施例2～4におけるように実施する。5回被覆し、焼戻し(5時間、400℃)した後に、担体は触媒物質15重量%を吸収したことになる。

触媒活性の測定は実施例1におけるように実施する。この場合に、第VI表に示す測定データを測定する。



第VI表

触媒温度 (℃)	NO投入量 (ppm)	O <sub>2</sub> 含量 (%)	NH <sub>3</sub> :NO	NO還元率 (%)
120	1000	0	0.7	21.3
160				42.1
200				56.1
240				77.8
280				86.9
320				90.0
360				92.9
400				94.0

## 実施例7

## Si、WおよびVの酸化物から成る触媒活性成分の組成物

Si 8.3 : W 8.4 : V 8.6 (原子%) の組成を有する触媒成分による担体付き触媒の製造:

テトラエトキシシラン Si (OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub> (Si 8.3 原子%) 130 g と VO (OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>3</sub> (V 8.6 原子%) 19.5 g とを混合する。WC 2, (W

8.4 原子%) 28.4 g をこの混合物に溶解し、混合物をエタノール 1500 ml で希釈する。

水 3.5 ml を加えた後に、60 分間攪拌し、さらに水 52 ml を攪拌しながら加える。生成した黄褐色溶液を被覆溶液として用いる。

コーゼライトハニカム体の被覆は実施例 2～4 におけるように実施する。10 回被覆し、焼成し (5 時間 / 400℃) した後、担体は触媒物質 15 重量% を吸収したことになる。

触媒活性の測定は実施例 1 におけるように実施する。この場合に、第 VI 表に述べた測定データを測定する。

第VII表

触媒温度 (℃)	NO投入量 (ppm)	O <sub>2</sub> 含量 (%)	NH <sub>3</sub> :NO	NO還元率 (%)
120	950	0	0.7	5.2
120	950	2.9	0.7	11.8
240	950	0	0.7	21.3
240	950	2.8	0.7	66.5
240	950	2.9	1.0	87.2
360	950	2.9	0.7	63.8
360	950	2.8	1.0	88.4

代理人弁理士(8107)佐々木清隆  
(ほか3名)



第1頁の続き

	識別記号	庁内整理番号
⑤Int.Cl.		
B 01 J 23/30		Z-7918-4G
// B 01 J 23/84		Z-7918-4G
⑬発明者	フランク・フッター	ドイツ連邦共和国 ウェルツブルク、ランデルザツケレル シュトラッセ 81
⑭発明者	ヘルムート・シュミツ ト	ドイツ連邦共和国 ツェリンゲン、バートシュトラッセ 2
⑰出願人	フラウンホーファー・ ゲゼルシャフト・ツー ル・フエルデルンク・ デア・アンゲヴァント テン・フォルシユン ク・エー・ファウ	ドイツ連邦共和国 ミュンヘン 19、レオンロートシュト ラーセ 54